

## BL25SU 軟X線固体分光ビームライン

BL25SUは軟X線分光を駆使して種々の固体物性を解明することを目的としており、ツインヘリカルアンジュレーターによる円偏光制御と、光学設計による高いエネルギー分解能が特色である。光電子分光 (PES) 装置では、内殻状態及びフェルミ面の電子状態の研究をバルク敏感かつ高いエネルギー分解能 ( $E/\Delta E > 10,000$ ) で実施しており、最近では100  $\mu\text{m}$ 程度の微小単結晶試料においても角度分解光電子分光が可能になっている。また、BL25SUではツインヘリカルアンジュレーターによる円偏光制御が多くの実験のキーテクノロジーであり、二次元表示型光電子アナライザー (2D-PES)、電磁石式磁気円二色性 (MCD) 測定装置、光電子顕微鏡 (PEEM) の3つの常設装置と、後述するパルス強磁場軟X線MCD測定装置で円偏光制御の特徴を活かした実験が展開されている。2D-PES装置においては、物質表面数層の原子配列を立体的に解析する技術が確立し、その構造情報と同時に分光的な視点での解析や磁気円二色性を組み合わせた磁気解析の有効性も実証されている。また、MCD装置は最大1.9 テスラ印加できる電磁石を備え、磁場下における磁性材料の元素別磁気解析 (磁気モーメントの導出や元素別磁気ヒステリシス測定) を可能とする。さらに、PEEMでは100 nm以下の空間分解能で元素マッピングや磁区解析が可能であり、SPring-8の放射光パルスと同期した時分割測定によって磁気ダイナミクスに踏み込んだ実験が行われている。2010年度には以上の常設装置に加えて、下流の持込スペースにパルス強磁場軟X線MCD測定装置を仮設置し、その測定技術の開発とデモンストレーション実験によって成果を得た。以下に2010年度に実施した測定技術開発と装置改造、及びトラブルとその対処に関する経緯について報告する。

### 1. ビームライン光学系の高度化

BL25SUでは、光学素子表面への炭素膜の堆積が進行している。これは、真空槽内の炭素を含む残留分子が放射光の照射により解離することで起こるものである。この炭素膜により、BL25SUでは特に炭素の吸収端での光強度が建設当初より低減していると考えられる。この炭素膜を、*in-situ*で放射光照射によって除去することを目的に、分光器の真空槽内に酸素を導入するガスラインと真空ポンプの増設を行った。酸素雰囲気放射光を照射することにより活性酸素が発生するため、炭素膜のアッシング効果が期待できる。酸素ガスは、光学素子表面のすぐ近くから噴き出せるようにガスラインを設計した。これは、アッシングの効率を高めることと、真空槽内の酸素の圧力をできる限り

低く抑えることが目的である。2011年度にアッシングのテストを行う予定である。

### 2. 光電子分光装置の高度化

BL25SUの光電子分光装置では、軟X線励起の角度分解光電子分光 (ARPES) が行われている。ARPESには通常、数mm程度の単結晶が求められるが、特に新物質の研究では、そのような大きな単結晶の準備が難しい場合が多い。我々は、SPring-8の高輝度ビームを活かし、100  $\mu\text{m}$ サイズの単結晶の測定が可能なARPES装置の開発を進めている。既に、100  $\mu\text{m}$ 角の試料を集光スポットに効率的に位置合わせする手法を2009年度に導入したが<sup>[1]</sup>、2010年度は、100 $\times$ 100 $\times$ 100  $\mu\text{m}^3$ の単結晶を真空中で劈開できる精密劈開器<sup>[2]</sup>を導入した。これらの開発により、ユーザー実験において、100  $\mu\text{m}$ サイズの単結晶に対して*in-situ*で清浄表面出しを行い、ARPES測定ができるようになると期待される。

### 3. PEEM装置の高度化

光電子顕微鏡ステーションでは汎用小型PEEM装置の利点を生かし、ダイナミクス観察システムやレーザーの導入など有用なオプションの充実化を図ってきた。2010年度は、高周波電流による励起条件下における光電子顕微鏡測定を可能にするため、真空マニピュレーター内の電流導入線と同軸タイプに変更した。その結果、10 dB程度の損失は認められるものの、数10 MHzの高周波導入時の磁気円盤のコアのダイナミクスを鮮明に捉えることができるようになった。真空内外におけるシールド線の取り回しを工夫することで、高周波の利得や波形をさらに改善できる見通しである。今後も、時分割測定を中心に、様々な外場環境での顕微分光測定を試みる。

### 4. 2D-PES装置

2009年度末に試料準備チャンバーなどの組み替えを行い、2010年度からこの運用を開始した。実験をしながら次のサンプルの準備 (表面クリーニングなど) を並行で進めて、超高真空を保ったままでサンプル交換が可能となった。実験の作業効率向上が確認できた。また、実験データ解析においては、逆行列を使ってサイト選択的に原子配列の立体写真が得られる方法が考案された。これを6H-SiC (0001) 表面に適用し、2つの異なったスタッキング層の原子配列の立体写真が得られた<sup>[3]</sup>。

5. パルス磁場による強磁場MCD測定技術の開発

本開発は、JASRIの競争的資金（GIGNO、中村哲也）、及び科学研究費補助金（No.21340107）等の支援を得て、JASRIと東北大学金属材料研究所、東京大学物性研究所の共同研究で進められている。2009年度末にクライオスタットや試料マニピュレーターなどを備えた実験装置が完成し、デッキ最下流部の持込装置スペースに仮設置した。2010年度より本格的に開発実験を行い、測定技術のデモンストレーションとなる成果を得た[4, 5]。

軟X線MCD実験は、元素選択性と高感度性を備えた磁気モーメントの評価技術として利用され、従来の磁化測定では得られない貴重な磁気情報が得られる。磁場に対する磁気モーメントの応答を調べることは、物質の磁性を解明するために最も基本的かつ重要な情報となるため、多様な物質の磁性を網羅的に調べるためにはより強力な磁場が必要である。そこで、超強磁場の発生が可能なパルス磁場方式を採用し、従来の最高磁場である10テスラを大きく超える20テスラ以上の磁場下での測定技術開発を行った。図1はパルス強磁場軟X線MCD装置の測定チャンバー断面模式図である。パルスマグネットは磁場発生に伴う発熱を効率よく除去するため液体窒素で直接冷却されている。試料は磁場発生コイルを貫く真空パイプのなかにセットされており、全電子収量法によって軟X線吸収を測定する。図2は、最大21テスラの磁場中における軟X線MCD実験の結果である。CoFe/MnIr薄膜のうちコバルト（Co）だけの磁性を選択的に取り出すことのできる軟X線エネルギー（780 eV）にセットして測定を行った。図2の横軸は磁場を発生しはじめてからの経過時間に対応し、黒線で示した磁場強度は0ミリ秒で急激に増加して、約3.3ミリ秒で最大の21テスラに到達した後、約50ミリ秒かけて緩やかに減衰していく様子が分かる。図2の左回り円偏光軟X線に対する吸収量と、右回り円偏光軟X線に対する吸収量は、磁場を発生した後に青線と赤線の挙動に差が生じ、磁場発生前の値を基準にして上下対称になる変化を生じている。軟X線MCDは赤線と青線の差分（緑線）で表されるので、図2において明瞭な軟X線MCDが観測され、測定に成功していることが分かる。また、利用研究と平行して最高磁場強度の増加、測定ソフトの修正、磁場反転機構の追加など、継続的な測定技術開発を行った。その結果、最大25.5テスラの強磁場下での軟X線MCD測定を実現した[5]。

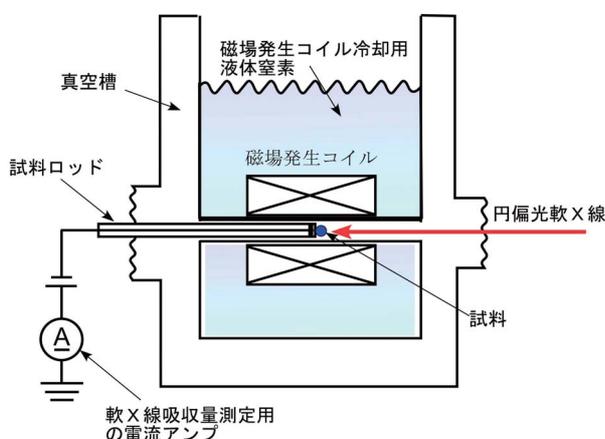


図1 パルス強磁場軟X線MCD装置の測定チャンバー断面模式図。パルスマグネットは磁場発生に伴う発熱を効率よく除去するため液体窒素で直接冷却されている。試料は磁場発生コイルを貫く真空パイプのなかにセットされており、全電子収量法によって軟X線吸収を測定する。

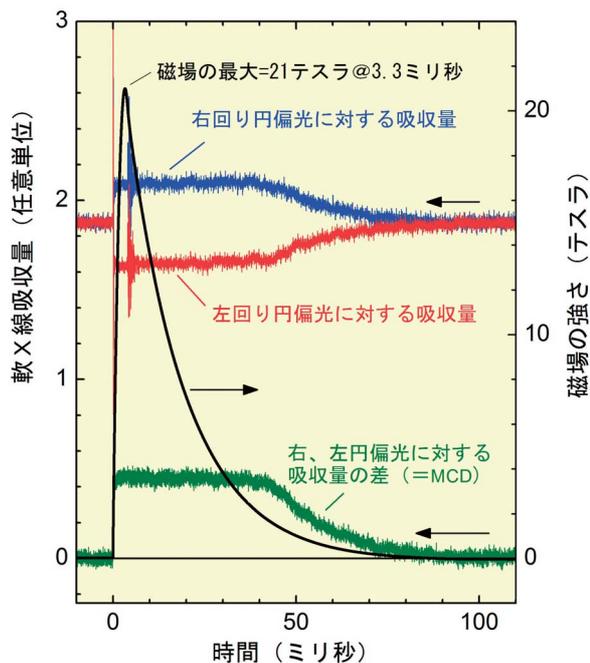


図2 CoFe/MnIr薄膜のCo  $L_3$ 吸収端における軟X線MCD測定結果。

する吸収量と、右回り円偏光軟X線に対する吸収量は、磁場を発生した後に青線と赤線の挙動に差が生じ、磁場発生前の値を基準にして上下対称になる変化を生じている。軟X線MCDは赤線と青線の差分（緑線）で表されるので、図2において明瞭な軟X線MCDが観測され、測定に成功していることが分かる。また、利用研究と平行して最高磁場強度の増加、測定ソフトの修正、磁場反転機構の追加など、継続的な測定技術開発を行った。その結果、最大25.5テスラの強磁場下での軟X線MCD測定を実現した[5]。

6. 機器トラブル修理対応

第6サイクル、PES装置において角度分解光電子分光測定時の計数率が異常に低下する問題が在ることが確認された。原因は、夏期停止期間に交換したMCP（Micro-Channel Plate）検出器におけるメーカー側の組み立てミスによるものと判明し、正しい構造に再組み立てすることで問題を解決した。また、ビームライン及び実験装置全般において、イオンポンプコントローラ、真空計、及び磁気導入器の修理を行うなど、経年劣化による故障・修理の頻度が増しており、今後、大規模な機器更新が必要である。

参考文献

[1] T. Muro, Y. Kato, T. Matsushita, T. Kinoshita, Y. Watanabe, A. Sekiyama, H. Sugiyama, M. Kimura, S. Komori, S. Suga, H. Okazaki and Y. Yokoya: Rev. Sci. Instrum. **80** (2009) 053910.  
 [2] T. Muro, Y. Kato, T. Kinoshita and Y. Watanabe: Rev. Sci. Instrum. **81** (2010) 043901.

- [3] F. Matsui, N. Nishikayama, N. Maejima, H. Matsui, K. Goto, M. Hashimoto, T. Hatayama, T. Matsushita, Y. Kato, S. Tanaka and H. Daimon: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 013601.
- [4] T. Nakamura, Y. Narumi, T. Hirono, M. Hayashi, K. Kodama, M. Tsunoda, S. Isogami, H. Takahashi, T. Kinoshita, K. Kindo and H. Nojiri: Appl. Phys. Express **4** (2011) 66602.
- [5] M. Hayashi, Y. Narumi, H. Nojiri, T. Nakamura, T. Hirono, T. Kinoshita, K. Kodama and K. Kindo: J. Electron Spectroscopy Related Phenom. J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **184** (2011) 338-341.

利用研究促進部門 分光物性Ⅱグループ

中村 哲也

木下 豊彦

応用分光物性グループ

室 隆桂之

大河内 拓雄

制御・情報部門 制御グループ

松下 智裕